

10/549848

JC20 Rec'd PCT/PTO 19 SEP 2005

DOCKET NO.: 278591US0PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Atsushi IWATA, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP04/03739

INTERNATIONAL FILING DATE: March 19, 2004

FOR: METHOD OF ALTERING CRYSTAL STRUCTURE OF GROUP 13 ELEMENT NITRIDE,
GROUP 13 ELEMENT NITRIDE AND STRUCTURE MATERIAL CONTAINING CUBIC
NITRIDE

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION

Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313


Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that
the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Japan	2003-077389	20 March 2003

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the
International Bureau in PCT Application No. PCT/JP04/03739. Receipt of the certified
copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been
acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number

22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)

19. 3. 2004

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

REC'D 13 APR 2004

WIPO PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2003年 3月20日

出願番号
Application Number: 特願2003-077389
[ST. 10/C]: [JP 2003-077389]

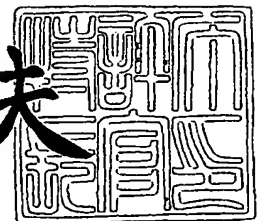
出願人
Applicant(s): 独立行政法人産業技術総合研究所


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 1月 9日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫





【書類名】 特許願

【整理番号】 338-02924

【提出日】 平成15年 3月20日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県つくば市東1-1-1 独立行政法人産業技術総合研究所つくばセンター内

 【氏名】 岩田 篤

【発明者】

 【住所又は居所】 茨城県つくば市東1-1-1 独立行政法人産業技術総合研究所つくばセンター内

 【氏名】 明渡 純

【特許出願人】

 【識別番号】 301021533

 【氏名又は名称】 独立行政法人産業技術総合研究所

 【代表者】 吉川 弘之

 【電話番号】 029-861-3280

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 図面 1

 【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 13族窒化物の結晶構造変化方法、13族窒化物および立方晶窒化物を含む構成物

【特許請求の範囲】

【請求項1】 六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として、減圧された成膜室内の基板へ吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4 [GPa] 以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるようにしたことを特徴とする13族窒化物の結晶構造変化方法。

【請求項2】 上記エアロゾル吹き付け時の粒子速度を300 [m/s] 以上とすることで、粒子の基板衝突時の衝撃力を4 [GPa] 以上としたことを特徴とする請求項1に記載の13族窒化物の結晶構造変化方法。

【請求項3】 六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として、減圧された成膜室内の基板へ吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4 [GPa] 以上、9 [GPa] 以下とすることで、基板に衝突して結晶構造が立方晶に変化した部分と六方晶のままの部分とが混在することを特徴とする13族窒化物。

【請求項4】 減圧された成膜室内におかれた極薄の板材より成る基板へ、六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4 [GPa] 以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着するようにしたことを特徴とする立方晶窒化物を含む構成物。

【請求項5】 粒子の基板衝突時の衝撃力を9 [GPa] 以下とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着する部分と六方晶のまま基板に固着する部分とが混在するようにしたことを特徴とする請求項4に記載の立方晶窒化物を含む構成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、13族窒化物と総称される窒化アルミニウム、窒化ガリウム、窒化インジウム等の結晶構造を、六方晶系から立方晶系へ変化させる13族窒化物の結晶構造変化方法、特異な結晶構造を有する13族窒化物および立方晶窒化物を含む構成物に関する。

【0002】

【従来の技術】

立方晶窒化アルミニウム、立方晶窒化ガリウム、立方晶窒化インジウムは、硬く、熱伝導率が高く、高い高温特性、高い化学的耐性などの優れた特性を持つ。このため、電子回路基板などに用いられている。また、バンドギャップが大きいため、短波長光の発光ダイオード素材などとしても注目されている。なお、窒化アルミニウム、窒化ガリウム、窒化インジウムは、常温常圧環境下では六方晶系のウルツ鉱構造をとり、準安定系として立方晶系をもとることが知られているが、常温常圧下では、通常、立方晶窒化物は得られない。

【0003】

例えば、ウルツ鉱構造窒化アルミニウムは十数GPa以上の圧力を加えることで立方晶に変態する（非特許文献1参照）。

【0004】

或いは、立方晶の基板にモレキュラービームエピタキシーを行い、数百度以上の温度でエピタキシャル成長させることによっても、立方晶窒化物を得ることができるが、この場合は、数十nmという極めて薄い膜厚にとどまる（非特許文献2参照）。

【0005】

【非特許文献1】

Mashimo, Uchino, Nakamura et al: Yield properties, phase transition, and equation of state of aluminum nitride(AlN) under shock compression up to 150 GPa, Journal of Applied Physics, Vol. 86, No. 12, 1999, pp. 6710-6716

【非特許文献2】

Critical Thickness for Transformation of Epitaxially Stabilize

d Cubic AlN in Superlattices I. W. Kim, Q. Li, L. D. Marks and S. A. Barnett Applied Physics Letters 78, 7, 892 (2001)

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

このように、静的圧力印加法（プレスなど）によって13族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系へ変化させるには数十GPaの加圧が必要で、ガラス、金属などの板上の膜状構造を得ることはできない。また、薄膜技術により立方晶窒化物を得るには、コスト高で、基板を選ぶし、 $0.1\mu\text{m}$ 以上の厚みを得ることができない。また、立方晶窒化アルミニウム、立方晶窒化ガリウム、立方晶窒化インジウムといった立方晶窒化物は容易に得られないために、その諸特性は明確には知られていないものの、対称性が六方晶より良いことから、キャリアの散乱が少なく、発光素子などの効率が向上することなどが期待されている。

【0007】

そこで、本発明は、静的圧力印加法によって13族窒化物の結晶構造を変化させるよりも簡易な装置構成で、13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させることが可能な13族窒化物の結晶構造変化方法の提供を目的とする。これと併せて、従来には得られなかった13族窒化物と、立方晶窒化物を含む構成物の提供を目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】

上記の課題を解決するために、請求項1に係る発明は、六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として、減圧された成膜室内の基板へ吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4[GPa]以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるようにしたことを特徴とする。

【0009】

また、請求項2に係る発明は、上記請求項1に記載の13族窒化物の結晶構造変化方法において、エアロゾル吹き付け時の粒子速度を300[m/s]以上とすることで、粒子の基板衝突時の衝撃力を4[GPa]以上としたことを特徴と



する。

【0010】

請求項3に係る発明は、六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として、減圧された成膜室内の基板へ吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4 [GPa] 以上、9 [GPa] 以下とすることで、基板に衝突して結晶構造が立方晶に変化した部分と六方晶のままの部分が混在することを特徴とする。

【0011】

請求項4に係る発明は、減圧された成膜室内におかれた極薄の板材より成る基板へ、六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4 [GPa] 以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着するようにしたことを特徴とする。

【0012】

また、請求項5に係る発明は、上記請求項4に記載の立方晶窒化物を含む構成物において、粒子の基板衝突時の衝撃力を9 [GPa] 以下とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着する部分と六方晶のまま基板に固着する部分とが混在するようにしたことを特徴とする。


【0013】

【発明の実施の形態】

次に、添付図面に基づいて、本発明に係る13族窒化物の結晶構造変化方法の実施形態を説明する。

【0014】

13族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系に変化させるためには、エアロゾルデポジション法（AD法）を用いる。このADは、各種セラミックスの緻密な膜を常温で形成できる画期的なセラミックスコーティング手法である（明渡純、マキシム・レベデフ：まてりあ、第41巻、7号（2002）、p. 459-466.）。また、原料としては、普通に入手可能な六方晶窒化アルミニウムの粉末（粒径0.1 μm ～5 μm ）を用い、エアロゾルデポジション法



により減圧下でノズルを通して、基板上に4〔GPa〕以上の衝撃力で噴射、堆積、成膜することにより、立方晶窒化アルミニウムの厚膜を常温、微減圧環境下で得ることができる。この手法は、他の13族窒化物（立方晶窒化ガリウム、立方晶窒化インジウム等）に対しても適用できる。

【0015】

なお、従来のエアロゾルデポジション法では、13族窒化物であるセラミックス微粒子を使って膜を形成する際に、原料微粒子の結晶構造を変化させずに、粒子同士を結合し膜化するところにポイントがあったが、本発明では、六方晶窒化物材料を4〔GPa〕以上の衝撃力で衝突させることにより立方晶構造に変化させるところに大きな違いがある。また、前述した従来の静的圧力印加法では、セラミックスの粉体に衝撃力を加えて固める際に、結晶構造の変化をもたらすには、10〔GPa〕以上の高い圧力が必要であった。これに対し、本発明では、10〔GPa〕以下の小さな衝撃力（4〔GPa〕の衝撃力）で、この様なセラミックス材料の構造変化を引き出した点に大きな特徴がある。これは、原料となるセラミックス粉末自体を衝突させる衝撃力を用いているためと考えられる。

【0016】

原料粉末には、ウルツ鉱構造をもつ、窒化アルミニウム粉末（-300メッシュ、粒径約0.5 μ m：フルウチ化学株式会社製）を使用した。使用した原料粒子の走査電子顕微鏡像を図1に示す。

【0017】

エアロゾルデポジション法による成膜を行うエアロゾルデポジション装置1の概略構成は、図2に示すようなもので、搬送ガスとしてHeを用い、原料粉末を詰めたエアロゾル化室2に圧縮ガスを吹き込み、粉末を舞い上がらせ、エアロゾル状態とし、搬送管3で接続された成膜室4に送り込む。この時、搬送ガス流量は、3～10〔l/min〕の範囲で制御する。成膜室4は真空ポンプ5（例えば、排気速度の高いメカニカルブースターポンプとロータリーポンプ）で排気・減圧し、搬送ガスを流した状態で200～8000〔Pa〕の真空度に保つ。なお、搬送管3の成膜室4内端部には10mm×0.4mmのスリット状開口のノズル6を設け、マスクを介して、原料粉末が搬送ガスと混合されたエアロゾルを



基板ホルダー 7 に固定した基板へ吹き付ける。

【0018】

基板としては、スライドガラス、石英ガラスを用いた。従来の静的圧力印加法を用いた 13 族窒化物の結晶構造変化方法のような十数 [GPa] の圧力が基板に作用すると、基板が適度な厚さ有していない限り基板が破壊してしまう。しかるに、本法によれば、基板に作用する圧力が低く、作用面積が小さく、さらに作用力が小さいため、基板が破壊しないで済む。このため、基板の厚さは、特に限定されない。例えば、10 mm 厚程度の薄基板を用いても良い。また、0.2 mm 程度の薄基板でも良い。X-Y-Z θ ステージ 8 (例えば、0.1 ~ 10 [mm/s] の移動速度を有する。) によって、基板を速度 1.2 [mm/s] で 10 [mm] 幅の往復運動を行わせた。この結果、原料粒子を搬送ガスに混合したエアロゾルが、基板上の主として 10 [mm] \times 10 [mm] の範囲に衝突することになる。

【0019】

原料粉末と基板上に形成された成膜体を、X線回折措置 (株式会社リガク製: RINT-2100VK/PC)、エネルギー分散 X 線分光分析装置 (日本電子株式会社製: JSM-5500 電子顕微鏡 + オックスフォード・インストルメンツ株式会社製: ISIS300)、微小ビッカース硬度計 (株式会社アカシ製: AAV-4 (M)) などで評価した。

【0020】

この方法で得られた膜の外観写真を図 3 に示す。基板上に 10 [mm] \times 10 [mm] の膜が形成されている。なお、形成される膜厚はデポジション時間によって制御でき、0.5 [μ m] 以下の薄い膜から、10 [μ m] を超える厚みの膜まで取得可能であった。

【0021】

形成された膜の硬さは、荷重 0.4903 [N] のビッカース硬さで 900 ~ 1300 [HV] であった。これは原料粉末のホットプレスによる焼結体と同程度の硬さである。

【0022】

また、形成された膜のエネルギー分散X線分光分析による定性分析ではAl、N、Oが検出された。原料粉末と膜のX線回折の結果を図4に示す。形成された膜は、強度やピーク幅に違いがあるほか、ややピーク位置のシフトがあるものの、粉末と同じピークを持つ。しかしながら、形成された膜には、 2θ が44度付近に原料粉末には見られないピークが現れている。このピークは立方晶のAlNによるものである。すなわち、エアロゾルデポジション法による成膜中に結晶構造の変化（六方晶系から立方晶系への変化）が生じたのである。

【0023】

この立方晶のピークと六方晶のピークの強度比は、デポジション条件によって変化する。膜中で結晶粒は同程度の大きさで、ランダムな方向を向いていると仮定すると、ピーク強度は、おおむね膜中の存在量を示すと考えられる。そこで、このガス流量やデポ時間を変えて膜を形成し、そのX線解析を行った。この結果を表1に示す。

【0024】

【表1】


表1 デポジション条件と立方晶のピーク

基板	ガス流量 l/min	デポ時間 min	膜厚 μm	X線回折 立方晶ピーク
スライドガラス	6	3	3	低い
スライドガラス	6	3	3.5	中
スライドガラス	6	30	11	中
スライドガラス	8	4	5	高い
スライドガラス	9	20	8	高い
石英ガラス	10	17	4	高い

【0025】

表1に示した実験結果から見ると、六方晶から立方晶に変化する度合いは、同一のノズルを用いているときには、ガス流量に最も依存し、ガス流量が多いと、立方晶の割合が高くなる（X線回折の立方晶ピークが高くなる）ことが分かる。このことから、粒子の衝突速度が高いと立方晶の割合が高くなるものと想定される。

【0026】



そこで、ガス流量と粒子速度の関係を飛行時間差法を用いた粒子速度の測定法により求め、図5に示した。粒子が成膜時に受ける衝撃力 σ は、粒子速度を v 、粒子のヤング率を E 、粒子の密度を ρ としたとき、 $\sigma = v \cdot (E \cdot \rho)^{1/2} / 2$ で与えられる。実験で求めた粒子速度からシミュレーションによって粒子衝突時の圧力を求めると、6 [GPa] 程度である。しかしながら、粒子のヤング率 E などはバルク材のものしか知られておらず、粒子の数値は厳密にはわからない。図4に示したX線回折の粒子速度300 [m/s] の場合でも立方晶のピークは微かに見られることから、これより小さい速度でも僅かながら立方晶への変化が起こっている。このような理由から、結晶構造が変化するには4 [GPa] 以上の衝撃力があれば十分なのである。

【0027】

このように、従来、ウルツ鉱構造窒化アルミニウムを加圧により立方晶窒化アルミニウムに変態させるには、十数 [GPa] 以上の圧力が必要であったが、エアロゾルデポジション法を用いて原料粒子を基材に衝突させ、衝撃的な圧力（静的な圧力印加でない。）を加えると、4 [GPa] と一桁以下の小さな圧力で、容易にウルツ鉱構造窒化アルミニウムから立方晶構造に変態させることができる。すなわち、エアロゾルデポジション法を用いて基板衝突時の粒子の衝撃力を4 [GPa] 以上とする13族窒化物の結晶構造変化方法は、静的圧力印加法による13族窒化物の結晶構造変化方法よりも、装置構成が簡便になり、工業的にも製造コストを低減できるのである。

【0028】

また、図4に示すX線回折の結果によると、膜の示すピークには立方晶のピークの他に、粉末のピークと同じ位置にある六方晶のピークも見られることから、六方晶と立方晶の窒化物が混在した膜になっている。このことから、粒子衝突時の圧力を加減することで、六方晶の結晶構造と立方晶の結晶構造が適宜な比率で混在する13族窒化物を得ることが出来る。また、極薄のガラス板や金属板上に六方晶の結晶構造と立方晶の結晶構造が適宜な比率で混在する13族窒化物の膜を固着させることも出来る。

【0029】

なお、基板として石英ガラスを用い、ガス流量を 10 [l/min] 以上（粒子速度で 450 [m/s] 以上）とすると、ほとんど全て立方晶の膜ができていた。石英ガラスはスライドガラスに比べてヤング率が高いので、粒子速度に対する衝撃力が高くなり、立方晶への結晶構造変化がスライドガラスよりも促進されるのである。このように、粒子衝突時の条件を適宜に設定することで、立方晶の割合が極めて高い 13 族窒化物を得ることも可能となる。また、極薄のガラス板や金属板上に立方晶の割合が極めて高い 13 族窒化物の膜を固着させることができる。

【0030】

これまで、エアロゾルデポジション法で酸化物、窒化物などの脆性材料を常温成膜した場合、成膜体の結晶組織は微細化するが、原料粒子の構造を維持しており、結晶系が変化することは無かった。しかしながら、原料粉末に 13 族窒化物を用い、基材（基板）への粒子衝突速度を 300 [m/s] 以上（ノズル開口サイズ： $10 \text{ [mm]} \times 0.4 \text{ [mm]}$ ）の場合は搬送ガス流量 6 [l/min] 以上）にすると、粒子衝突時の衝撃力が 4 [GPa] 以上となって、常温下の条件で窒化物を六方晶から立方晶に変化させることができた。しかも、粒子衝突時の衝撃力を加減することで、六方晶の結晶構造と立方晶の結晶構造を混在させることも可能となるし、極薄のガラス板や金属板上に窒化物の膜を固着させることで、立方晶窒化物を含む構成物を得ることも可能となる。

【0031】

【発明の効果】

以上説明したように、請求項 1 に係る 13 族窒化物の結晶構造変化方法によれば、減圧された成膜室内の基板へ、六方晶系の結晶構造である 13 族窒化物の原料粉末と搬送ガスからなるエアロゾルを吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を 4 [GPa] 以上とすることで、基板に衝突した 13 族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるので、数十 $[\text{GPa}]$ という非常に大きな圧力を要する静的圧力印加法による 13 族窒化物の結晶構造変化方法よりも簡単な装置構成で、立方晶窒化物を常温下で簡易に得ることが可能となる。

【0032】

また、請求項2に係る13族窒化物の結晶構造変化方法によれば、13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるのに要する4〔GPa〕以上の衝撃力を、エアロゾル吹き付け時の粒子速度を300〔m/s〕以上とすることにより実現するので、装置設計時の指標となる。

【0033】

請求項3に係る13族窒化物は、結晶構造が立方晶に変化した部分と六方晶のままの部分が混在する。従来の静的圧力印加法を用いて13族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系へ変化させる方法では、六方晶の部分と立方晶の部分を混在させることは不可能であった。

【0034】

請求項4に係る立方晶窒化物を含む構成物によれば、基板に衝突する個々の粒子に4〔GPa〕以上の衝撃力が作用するが、これは基板にとって損壊に至るほどの衝撃ではないため、極薄の基板に立方晶窒化物を固着させた構成を得ることが出来る。従来の静的圧力印加法を用いて13族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系へ変化させる方法では、加圧時の衝撃に耐える必要があるため、極薄の基板に立方晶窒化物の膜を形成することは不可能であった。

【0035】

また、請求項5に係る立方晶窒化物を含む構成物によれば、粒子の基板衝突時の衝撃力を9〔GPa〕以下としたので、13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着する部分と六方晶のまま基板に固着する部分とを混在させて極薄の基板に固着させた構成を得ることが出来る。

【図面の簡単な説明】

【図1】

六方晶の原料（AlN）粉末の顕微鏡写真である。

【図2】

エアロゾルデポジション装置の概略構成図である。

【図3】

AD法を用いて形成したAlN膜の外観写真である。

【図4】



形成された膜と原料粉末の X 線回折スペクトルである。

【図 5】

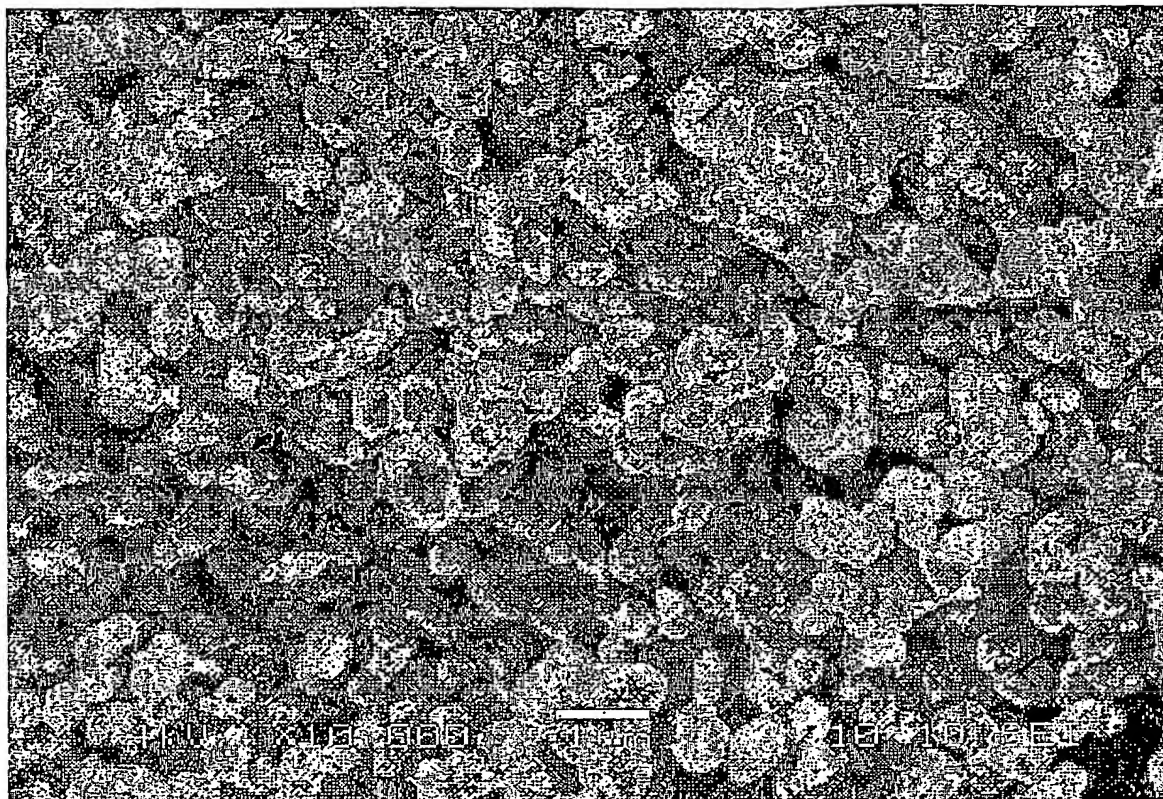
搬送ガス流量と粒子速度の特性図である。

【符号の説明】

- 1 エアロゾルデポジション装置
- 2 エアロゾル化室
- 3 搬送管
- 4 成膜室
- 5 真空ポンプ
- 6 ノズル
- 7 基板ホルダー
- 8 X-Y-Z θ ステージ

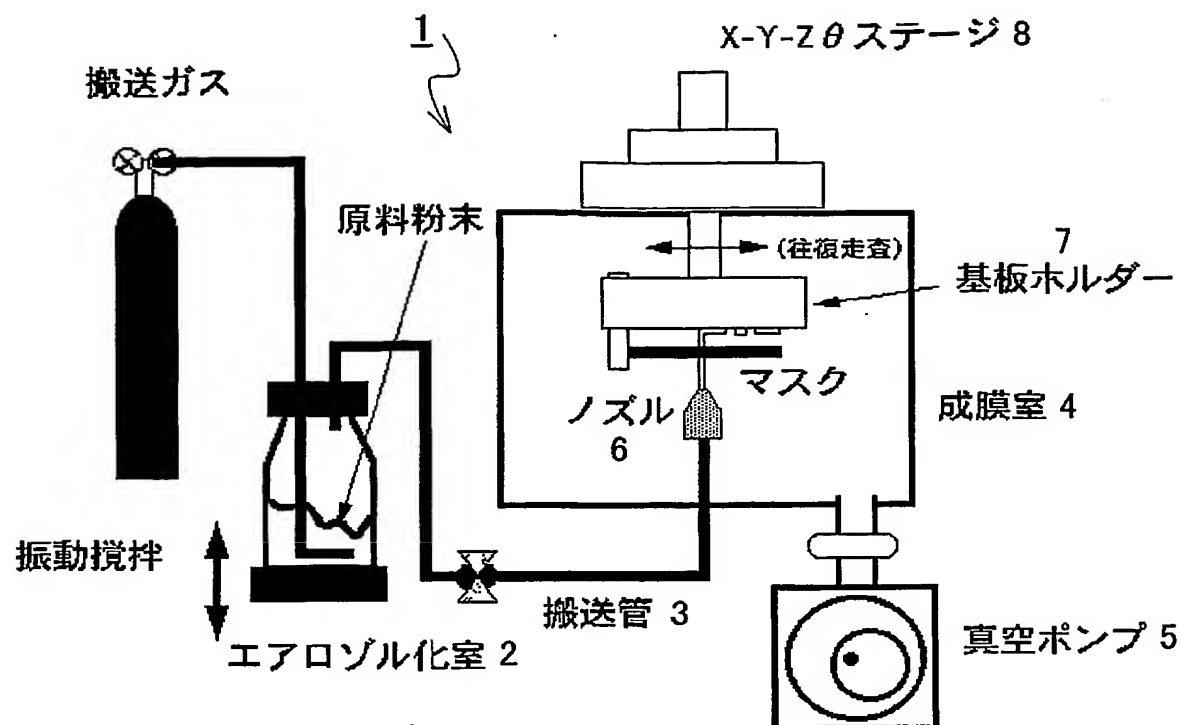
【書類名】 図面

【図 1】

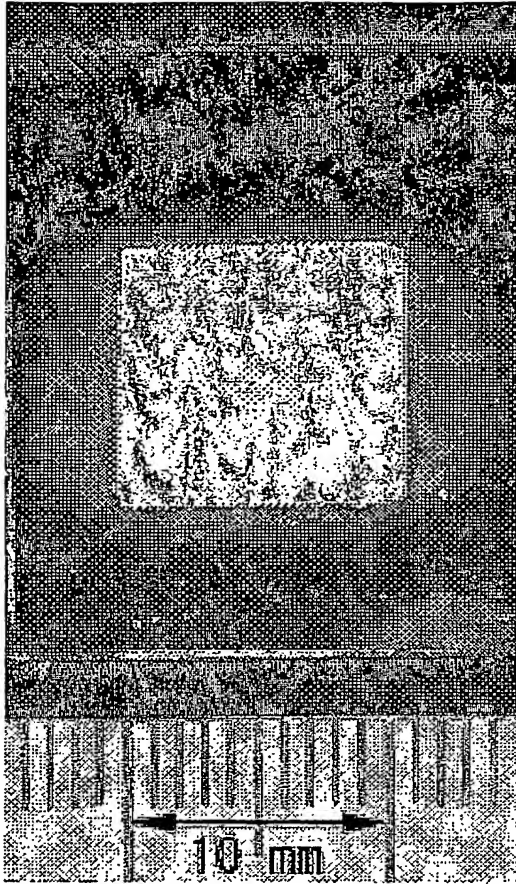


BEST AVAILABLE COPY

【図 2】

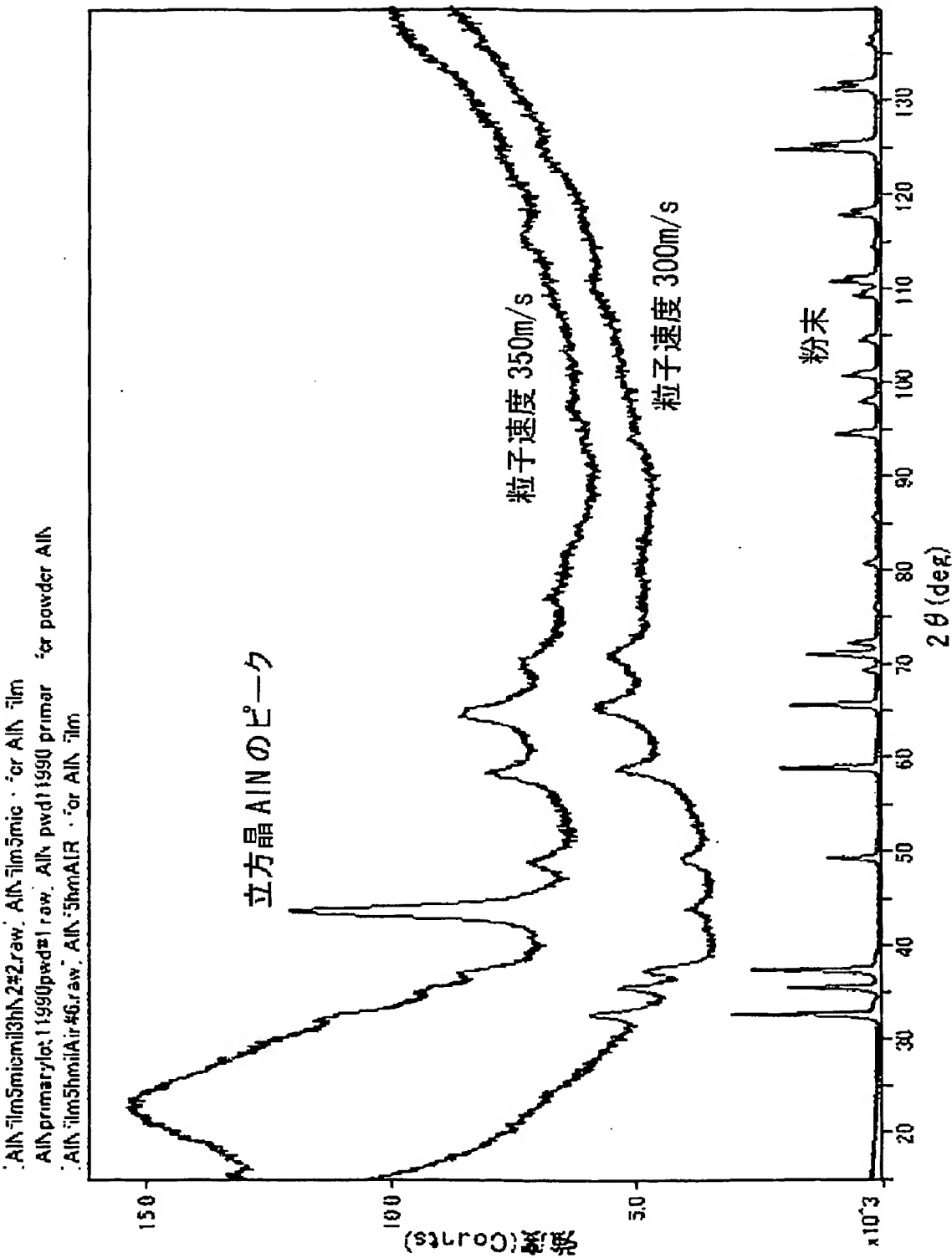


【図 3】

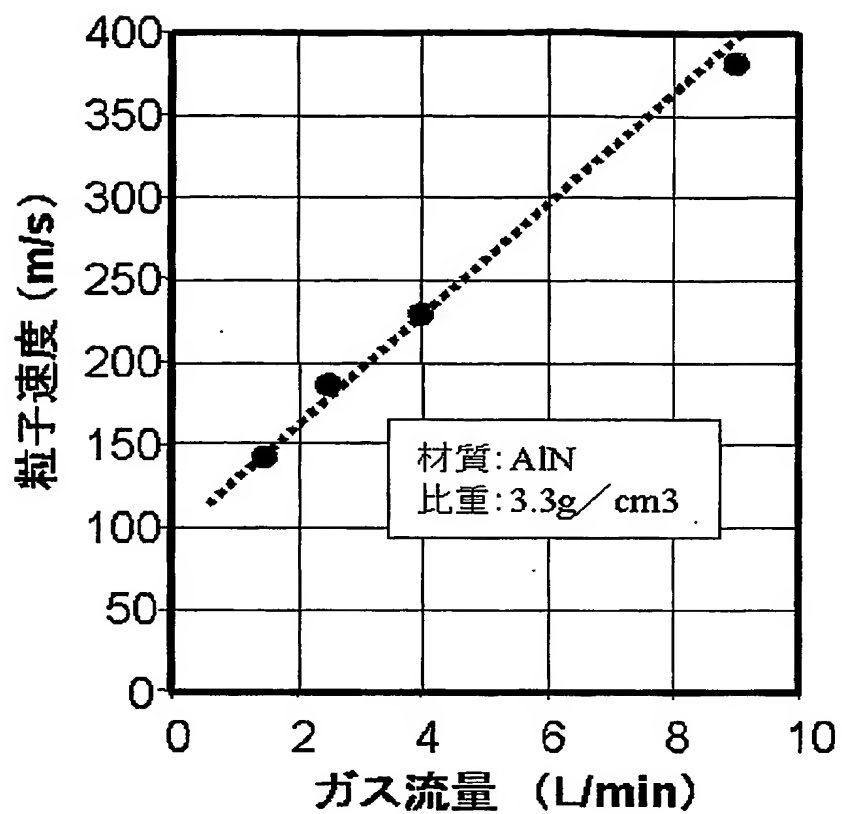


BEST AVAILABLE COPY

【図 4】



【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 静的圧力印加法による 13 族窒化物の結晶構造変化方法よりも簡易な装置構成で、13 族窒化物の結晶構造を変化させることが可能な 13 族窒化物の結晶構造変化方法を提供する。

【解決手段】 搬送ガス He と六方晶窒化アルミニウムの粉末をエアロゾル化室 2 でエアロゾル状態とし、搬送管 3 を介して成膜室 4 へ送り込み、成膜室 4 はエアロゾルが供給された状態で 200～8000 [Pa] の真空度に保たれるように真空ポンプ 5 で減圧しておき、成膜室 4 における搬送管 3 の端部に設けたノズル 6 から基板ホルダー 7 に固定した基板へ、粒子衝突時の衝撃力が 4 [GPa] 以上となるようにエアロゾルを吹き付けると、窒化アルミニウムの結晶構造が六方晶から立方晶に変化し、基板上には立方晶窒化アルミニウムが堆積してゆく。

【選択図】 図 2

特願 2003-077389

出願人履歴情報

識別番号

[301021533]

1. 変更年月日

2001年 4月 2日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区霞が関1-3-1

氏 名

独立行政法人産業技術総合研究所